



Best Available Copy

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	FR	Frankreich	MR	Mauritanien
AU	Australien	GA	Gabon	MW	Malawi
BB	Barbados	GB	Vereinigtes Königreich	NL	Niederlande
BE	Belgien	GN	Guinea	NO	Norwegen
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	NZ	Neuseeland
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	PL	Polen
BJ	Benin	IE	Irland	PT	Portugal
BR	Brasilien	IT	Italien	RO	Rumänien
CA	Kanada	JP	Japan	RU	Russische Föderation
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SD	Sudan
CG	Kongo	KR	Republik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KZ	Kasachstan	SK	Slowakische Republik
CI	Côte d'Ivoire	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CM	Kamerun	LK	Sri Lanka	SU	Sowjet Union
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TD	Tschad
CZ	Tschechische Republik	MC	Monaco	TG	Togo
DE	Deutschland	MG	Madagaskar	UA	Ukraine
DK	Dänemark	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
ES	Spanien	MN	Mongolei	VN	Vietnam
FI	Finnland				

Saure Haarpflegemittel

Gebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft saure Haarpflegemittel enthaltend quaternierte Fettsäuretrialkanolaminester-Salze sowie deren Verwendung zur Herstellung von Haarspülungen, Haarpflege-emulsionen, Haarkuren, Aerosolschäumen und Fönlotionen.

Stand der Technik

Schädigungen der Haarstruktur sind die Folge häufigen Bleichens, Dauerwellens, Färbens, starker UV-Belastung, Waschens der Haare mit entfettenden Tensiden sowie das Ergebnis einer normalen Alterung. Das Haar wird spröde und verliert seinen Glanz. Des weiteren findet beim Kämmen des Haares eine elektrostatische Aufladung statt, während die aufgerauhte Haaroberfläche Anlaß zu Verfilzungen und Verknotungen des Haares gibt und auf diese Weise das Kämmen erschwert. Haarpflegemittel mit einer kämmbarkeitsverbessernden Wirkung haben daher erhebliche Bedeutung auf dem Kosmetikmarkt erlangt. Derartige Mittel können beispielsweise in Form einer Spülung, eines Aerosol-Schaums oder auch in Form von Emulsionen (Creme-Rinses) nach der Haarwäsche im noch nassen Haar

verteilt und entweder nach einigen Minuten Einwirkungszeit ausgespült oder auf dem Haar belassen werden.

Als Wirkstoffe zur Verbesserung der Haarstruktur haben sich kationische Tenside, insbesondere quaternäre Ammoniumverbindungen wie beispielsweise Distearyl dimethylammoniumchlorid (DSDMAC) alleine oder in Kombination mit verschiedenen wachsartigen Zusätzen, wie Kohlenwasserstoffen, Fettalkoholen oder Fettsäureestern bewährt [Parf.Kosm. 56, 157 (1975)].

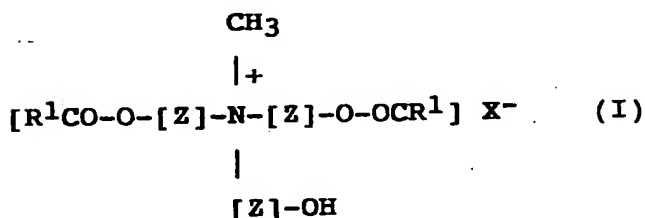
Von Nachteil ist hierbei jedoch, daß die genannten Kationtenside eine unzureichende biologische Abbaubarkeit aufweisen und somit bei Eintragung in Oberflächengewässer im Laufe der Zeit die Funktionsfähigkeit aquatischer Lebensgemeinschaften beeinträchtigen können.

Aus der Deutschen Patentanmeldung DE 35 27 974 A1 sind darüber hinaus Ester des Betains mit Fettalkoholen oder Fettalkoholpolyglycolethern für den Einsatz in sauren Haarpflegemitteln bekannt. Die Betainester weisen zwar eine hohe ökotoxikologische Verträglichkeit auf, sind jedoch im Hinblick auf Kämmbarkeitsverbesserung, Antistatik, Griff und Ausspülverhalten unbefriedigend und zudem im sauren Bereich nicht hydrolysestabil.

Die Aufgabe der Erfindung bestand somit darin, neue saure Haarpflegemittel zu entwickeln, die frei von den geschilderten Nachteilen sind.

Beschreibung der Erfindung

Gegenstand der Erfindung sind saure Haarpflegemittel enthaltend quaternierte Fettsäuretrialkanolaminester-Salze der Formel (I)



in der

R^1CO für einen linearen oder verzweigten, aliphatischen Acylrest mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen und 0 oder 1 Doppelbindung,

$[\text{Z}]$ für eine Ethylen-, Propylen- oder Isopropylen-Gruppe und

X für Chlorid, Bromid, Sulfat, Methosulfat oder Phosphat steht.

Überraschenderweise wurde gefunden, daß die erfindungsgemäßen Mittel die Trocken- und Naßkämmbarkeit von Haaren auf bis zu 20 % des Ausgangswertes vermindern können und eine elektrostatische Aufladung beim Trockenkämmen nahezu vollständig unterdrücken. Die Produkte verleihen dem Haar einen weichen Griff und lassen sich leicht wieder ausspülen. Im Gegensatz zu den gängigen Produkten des Marktes sind sie sowohl aerob

als auch anaerob vollständig biologisch abbaubar und zeichnen sich durch eine unerwartet geringe akute bzw. chronische Toxizität gegenüber aquatischen Lebensgemeinschaften aus. Des weiteren sind sie sowohl im alkalischen als auch sauren pH-Bereich außerordentlich hydrolyse- und lagerstabil.

Quaternierte Fettsäuretrialkanolaminester-Salze stellen bekannte Stoffe dar, die nach den einschlägigen Methoden der präparativen organischen Chemie erhalten werden können. Zu ihrer Herstellung geht man beispielsweise von Triethanolamin aus, das mit Fettsäuren verestert und anschließend mit Dimethylsulfat quaterniert wird. Die Verwendung derartiger Stoffe als Avivagemittel für Textilien ist beispielsweise aus der Europäischen Patentanmeldung EP 0 370 675 A2 bekannt.

Typische Beispiele für quaternierte Fettsäuretrialkanolaminester-Salze sind Difettsäureester von Triethanolamin, Tripropanolamin und Tri-i-propanolamin mit Capronsäure, Caprylsäure, Caprinsäure, Laurinsäure, Myristinsäure, Palmitinsäure, Stearinsäure, Ölsäure, Elaidinsäure, Petroselinssäure, Arachinsäure, Behensäure und Erucasäure, die mit Methylchlorid, Dimethylsulfat oder Dimethylphosphat quaterniert worden sind. Mittel mit besonders vorteilhaften anwendungstechnischen Eigenschaften weisen einen Gehalt von quaternierten Fettsäuretrialkanolaminester-Salzen der Formel (I) auf, in der R^1CO für einen Acylrest mit 16 bis 18 Kohlenstoffatomen, $[Z]$ für eine Ethylengruppe und X für Methosulfat steht.

Wie in der Fettchemie üblich, können zur Herstellung der quaternierten Fettsäuretrialkanolaminester-Salze auch technische Fettsäureschnitte eingesetzt werden, wie sie bei der

Druckspaltung von Fetten und Ölen, beispielsweise Palmöl, Palmkernöl, Kokosöl oder Rindertalg anfallen. Bevorzugt sind quaternierte Estersalze, deren Fettsäurekomponente sich von Fettsäuren mit 12 bis 18, vorzugsweise 16 bis 18 Kohlenstoffatomen ableitet. Als besonders vorteilhaft haben sich darüberhinaus quaternierte Estersalze erwiesen, die auf Basis von technischer Elaidinsäure, d. h. einer Octadecen-9-säure mit einem Gehalt an trans-ständigen Doppelbindungen von 35 bis 95, vorzugsweise 40 bis 70 Gew.-%, hergestellt werden.

Die erfindungsgemäßen Mittel können die Estersalze der Formel (I) in Mengen von 0,1 bis 25, vorzugsweise 1 bis 10 Gew.-% - bezogen auf die Mittel - enthalten.

Der pH-Wert der sauren Haarpflegemittel kann im Bereich von 2 bis 5, vorzugsweise 2,5 bis 4,5 liegen. Er kann beispielsweise mit Hilfe von Essigsäure, Milchsäure, Citronensäure, Salzsäure, Phosphorsäure oder Betainhydrochlorid eingestellt werden.

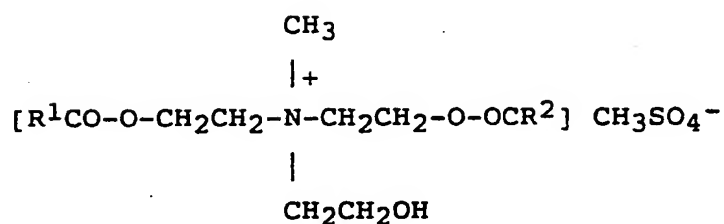
Obschon die Mittel auch als saure Lösungen oder Suspensionen der quaternierten Fettsäuretrialkanolaminester-Salze in Wasser auf den Markt gebracht werden können, enthalten sie bevorzugt weitere, in kosmetischen Mitteln übliche Bestandteile, wie beispielsweise Fettalkohole, Fettalkoholpolyglycol-ether, Fettsäureester, Konservierungsmittel, Vitamine und Wachse.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung betrifft die Verwendung der Fettsäuretrialkanolaminester-Salze der Formel (I) zur Herstellung von Haarpflegemitteln, wie beispielsweise

- 6 -

Haarspülungen, Haarpflegeemulsionen, Haarkuren, Aerosol-schäumen und Fönlotionen.

Die folgenden Beispiele sollen den Gegenstand der Erfindung näher erläutern, ohne ihn darauf einzuschränken.

Beispiele**I. Eingesetzte quaternierte Fettsäuretrialkanolaminester-Salze**

- A1) $\text{R}^1\text{CO} = \text{C}_{16/18}\text{-Acylrest,}$
 Basis Talgfettsäure
- A2) $\text{R}^1\text{CO} = \text{C}_{16/18}\text{-Acylrest,}$
 Basis Palmfettsäure
- A3) $\text{R}^1\text{CO} = \text{C}_{16/18}\text{-Acylrest,}$
 Basis technische Elaidinsäure:
 40 Gew.-% trans-Octadecen-9-säure
 60 Gew.-% cis-Octadecen-9-säure

II. Eingesetzte Rezepturen

Tab.1: Haarpflegemittel-Rezepturen

<u>Komponenten</u> Gew.-%	Rezeptur				
	A	B	C	D	E
A1	-	-	1,2	-	-
A2	-	-	-	1,2	-
A3	-	-	-	-	1,2
Dehyquart DAM	-	1,3	-	-	-
Emulgade 1000 NI	4,0	4,0	4,0	4,0	4,0
Kathon CG	0,07	0,07	0,07	0,07	0,07
Wasser	ad 100				
pH-Wert	4,0				

Legende:

Dehyquart(R) DAM = Distearyl dimethylammoniumchlorid

Emulgade (R) 1000 NI = C_{16/18}-Fettalkohol/
C_{16/18}-Fettalkohol-20EO-Addukt
(Gewichtsverhältnis 1 : 1)

Kathon(R) CG = Konservierungsmittel

Die Rezepturen C, D und E sind erfindungsgemäß, die Rezepturen A und B dienen dem Vergleich.

III. Anwendungstechnische Beispiele

a) Trockenkämmbarkeit/Elektrostatische Aufladung

Die elektrostatische Aufladung wurde parallel mit der Trockenkämmbarkeit unter Zulassung der elektrostatischen Aufladung untersucht. Es wurde eine relative Luftfeuchtigkeit von 20 % eingestellt. Die Konditionierungszeit betrug 12 h bei 30°C. Die Messung erfolgte über den Ladungsabgriff an einem doppelten Faraday-Käfig nach Ausführung von 10 Kämmungen. Der Fehler bei den Messungen betrug im Mittel 2,5 %, die statistische Sicherheit lag bei mindestens 99,9 %. Die Ergebnisse der Kämmarbeiten sind in Tab.2 und 3 zusammengefaßt.

b) Naßkämmbarkeit

Die Naßkämmbarkeit wurde an braunem Haar (Alkinco #6634, Strähnenlänge 12 cm, Strähnenmasse 1 g) untersucht. Nach der Nullmessung wurden die Strähnen mit 100 ml der Formulierungen A bis E getränkt. Nach einer Einwirkzeit von 5 min wurden die Strähnen 1 min unter fließendem Wasser (1 l/min, 38°C) ausgespült. Die Strähnen wurden erneut vermessen und mit der Nullmessung verglichen. Der Fehler bei den Messungen betrug im Mittel 2 %, die statistische Sicherheit lag bei mindestens 99 %. Die Ergebnisse sind in Tab.4 zusammengefaßt.

Eine ausführliche Beschreibung der Meßmethoden befindet sich in J.Soc.Cosm.Chem., 24, 782 (1973).

Tab.2: Trockenkämbarkeit

Bsp.	Rezeptur	Trockenkämbarkeit [mJ]	
		vorher	nachher
1	C	4,5	0,8
2	D	4,0	0,7
3	E	4,1	1,2
V1	A	5,3	3,1
V2	B	3,6	0,8

Tab.3: Elektrostatische Aufladung

Bsp.	Rezeptur	Elstat. Aufladung [V]	
		vorher	nachher
4	C	1,8	-0,2
5	D	2,1	-0,2
6	E	2,2	-0,1
V2	A	2,5	1,2
V3	B	2,2	-0,2

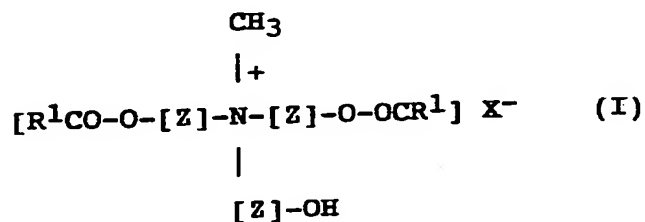
Tab.4: Naßkämmbbarkeit

Bsp.	Rezeptur	Naßkämmbbarkeit [mJ]	
		vorher	nachher
7	C	24,0	7,3
8	D	23,6	4,5
9	E	20,9	4,9
V5	A	27,4	18,5
V6	B	23,7	3,8

- 12 -

Patentansprüche

1. Saure Haarpflegemittel enthaltend quaternierte FettsäuretrialkanolaminesterSalze der Formel (I)



in der

R^1CO für einen linearen oder verzweigten, aliphatischen Acylrest mit 6 bis 22 Kohlenstoffatomen und 0 oder 1 Doppelbindung,

$[\text{Z}]$ für eine Ethylen-, Propylen- oder Isopropylen-Gruppe und

X für Chlorid, Bromid, Sulfat, Methosulfat oder Phosphat

steht.

2. Mittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R^1CO für einen Acylrest mit 16 bis 18 Kohlenstoffatomen steht.
3. Mittel nach den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß $[\text{Z}]$ für eine Ethylengruppe steht.

4. Mittel nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß X für Methosulfat steht.
5. Mittel nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß Estersalze der Formel (I) in Mengen von 0,1 bis 25 Gew.-% - bezogen auf die Mittel - enthalten sind.
6. Mittel nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der pH-Wert 2 bis 5 beträgt.
7. Mittel nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß gegebenenfalls Fettalkohole, Fettalkoholpolyglycolether, Fettsäureester, Konservierungsmittel, Vitamine, Wachse sowie weitere übliche Kosmetikinhaltstoffe enthalten sind.
8. Verwendung von quaternierten Fettsäuretrialkanolaminester-Salzen der Formel (I) zur Herstellung von Haarspülungen, Haarpflegeemulsionen, Haarkuren, Aerosolschäumen und Fönlotionen.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 92/02633

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁵ A61K7/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁵ A61K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP,A,0 309 052 (THE PROCTER & GAMBLE COMPANY) 29 March 1989 see page 3 - page 6 see claim 12	1-8
X	EP,A,0 284 036 (HOECHST AKTIENGESSELLSCHAFT) 28 September 1988 see the whole document	1-4, 8
Y	EP,A,0 252 441 (HENKELKOMMANDITGESELLSCHAFT AUF AKTIEN) 13 January 1988 see the whole document	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

• Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 January 1993 (28.01.93)

Date of mailing of the international search report

16 February 1993 (16.02.93)

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 92/02633

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP,A,0 299 787 (KAO CORPORATION) 18 January 1989 see compound IIIa, page 3 see page 4, line 1 - line 13	1-8
A	EP,A,0 367 939 (WELLA AKTIENGESELLSCHAFT) 16 May 1990 see the whole document	1-8

**ANNEX TO THE INTERNATIONAL SEARCH REPORT
ON INTERNATIONAL PATENT APPLICATION NO.**

EP 9202633
SA 66496

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report.
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information. 28/01/93

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP-A-0309052	29-03-89	AU-A-	2243488	23-03-89
		DE-A-	3876196	07-01-93
		JP-A-	1162872	27-06-89

EP-A-0284036	28-09-88	DE-A-	3710064	06-10-88
		JP-A-	63290853	28-11-88

EP-A-0252441	13-01-88	DE-A-	3623215	21-01-88
		DE-A-	3774195	05-12-91
		JP-A-	63023846	01-02-88
		US-A-	4874554	17-10-89

EP-A-0299787	18-01-89	JP-A-	1026788	30-01-89
		JP-A-	1061571	08-03-89
		US-A-	4885102	05-12-89

EP-A-0367939	16-05-90	DE-A-	3837860	10-05-90
		AU-B-	614434	29-08-91
		AU-A-	4313089	28-05-90
		WO-A-	9004959	17-05-90
		JP-T-	3502332	30-05-91

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

/EP 92/02633

I. KLASSEIFIKATION DES ANMELDUNGSGEGENSTANDS (bei mehreren Klassifikationssymbolen sind alle anzugeben)⁶

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

Int.Kl. 5 A61K7/06

II. RECHERCHIERTE SACHGEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff⁷

Klassifikationssystem

Klassifikationssymbole

Int.Kl. 5

A61K

Recherchierte nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Sachgebiete fallen⁸III. EINSCHLAGIGE VERÖFFENTLICHUNGEN⁹

Art. ¹⁰	Kennzeichnung der Veröffentlichung ¹¹ , soweit erforderlich unter Angabe der maßgeblichen Teile ¹²	Betr. Anspruch Nr. ¹³
X	EP,A,0 309 052 (THE PROCTER & GAMBLE COMPANY) 29. März 1989 siehe Seite 3 - Seite 6 siehe Anspruch 12	1-8
X	EP,A,0 284 036 (HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT) 28. September 1988 siehe das ganze Dokument	1-4,8
Y	EP,A,0 252 441 (HENKELKOMMANDITGESELLSCHAFT AUF AKTIEN) 13. Januar 1988 siehe das ganze Dokument	1-8
	--- -/-	

¹⁰ Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen¹⁰:

- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

IV. BESCHEINIGUNG

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

28. JANUAR 1993

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

11.02.93

Internationale Recherchenbehörde

EUROPAISCHES PATENTAMT

Unterschrift des bevollmächtigten Bediensteten

GAC G.

III. EINSCHLAGIGE VERÖFFENTLICHUNGEN (Fortsetzung von Blatt 2)		
Art °	Kennzeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der maßgeblichen Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP,A,0 299 787 (KAO CORPORATION) 18. Januar 1989 Siehe Verbindung IIIa, Seite 3 siehe Seite 4, Zeile 1 - Zeile 13 -----	1-8
A	EP,A,0 367 939 (WELLA AKTIENGESELLSCHAFT) 16. Mai 1990 siehe das ganze Dokument -----	1-8

**ANHANG ZUM INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHT
ÜBER DIE INTERNATIONALE PATENTANMELDUNG NR.**

EP 9202633
SA 66496

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten internationalen Recherchenbericht angeführten Patentedokumente angegeben.
Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am
Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

28/01/93

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP-A-0309052	29-03-89	AU-A-	2243488	23-03-89
		DE-A-	3876196	07-01-93
		JP-A-	1162872	27-06-89

EP-A-0284036	28-09-88	DE-A-	3710064	06-10-88
		JP-A-	63290853	28-11-88

EP-A-0252441	13-01-88	DE-A-	3623215	21-01-88
		DE-A-	3774195	05-12-91
		JP-A-	63023846	01-02-88
		US-A-	4874554	17-10-89

EP-A-0299787	18-01-89	JP-A-	1026788	30-01-89
		JP-A-	1061571	08-03-89
		US-A-	4885102	05-12-89

EP-A-0367939	16-05-90	DE-A-	3837860	10-05-90
		AU-B-	614434	29-08-91
		AU-A-	4313089	28-05-90
		WO-A-	9004959	17-05-90
		JP-T-	3502332	30-05-91

EPO FORM P003

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.